

27. 4. 2004

日 本 国 特 許 庁  
JAPAN PATENT OFFICE

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

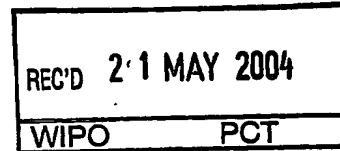
This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出 願 年 月 日  
Date of Application: 2 0 0 3 年 4 月 3 0 日

出 願 番 号  
Application Number: 特 願 2 0 0 3 - 1 2 5 8 4 4

[ST. 10/C]: [ J P 2 0 0 3 - 1 2 5 8 4 4 ]

出 願 人  
Applicant(s): 日 本 電 気 株 式 会 社

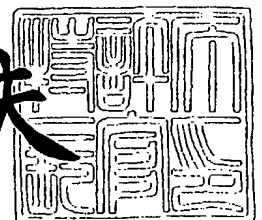


**PRIORITY  
DOCUMENT**  
SUBMITTED OR TRANSMITTED IN  
COMPLIANCE WITH RULE 17.1 (a) OR (b)

2 0 0 4 年 4 月 6 日

特許庁長官  
Commissioner,  
Japan Patent Office

今 井 康 夫



【書類名】 特許願

【整理番号】 34103766

【提出日】 平成15年 4月30日

【あて先】 特許庁長官殿

【国際特許分類】 C01B 31/00

【発明者】

    【住所又は居所】 東京都港区芝五丁目 7 番 1 号 日本電気株式会社内

    【氏名】 筋 丈史

【発明者】

    【住所又は居所】 東京都港区芝五丁目 7 番 1 号 日本電気株式会社内

    【氏名】 吉武 務

【発明者】

    【住所又は居所】 東京都港区芝五丁目 7 番 1 号 日本電気株式会社内

    【氏名】 久保 佳実

【発明者】

    【住所又は居所】 東京都港区芝五丁目 7 番 1 号 日本電気株式会社内

    【氏名】 飯島 澄男

【発明者】

    【住所又は居所】 東京都港区芝五丁目 7 番 1 号 日本電気株式会社内

    【氏名】 糟屋 大介

【発明者】

    【住所又は居所】 東京都港区芝五丁目 7 番 1 号 日本電気株式会社内

    【氏名】 湯田坂 雅子

【特許出願人】

    【識別番号】 000004237

    【氏名又は名称】 日本電気株式会社

【代理人】

【識別番号】 100110928

【弁理士】

【氏名又は名称】 速水 進治

【電話番号】 03-5784-4637

【手数料の表示】

【予納台帳番号】 138392

【納付金額】 21,000円

【提出物件の目録】

【物件名】 明細書 1

【物件名】 図面 1

【物件名】 要約書 1

【包括委任状番号】 0110433

【プルーフの要否】 要

【書類名】 明細書

【発明の名称】 ナノカーボン製造装置およびナノカーボンの製造方法

【特許請求の範囲】

【請求項 1】 シート状または棒状のグラファイトターゲットを保持するターゲット保持手段と、

前記グラファイトターゲットの表面に光を照射する光源と、

前記ターゲット保持手段に保持された前記グラファイトターゲットと前記光源のうち一方を他方に対して相対的に移動させ、前記グラファイトターゲットの表面における前記光の照射位置を移動させる移動手段と、

前記光の照射により前記グラファイトターゲットから蒸発した炭素蒸気を回収し、ナノカーボンを得る回収手段と、

を備えることを特徴とするナノカーボン製造装置。

【請求項 2】 請求項 1 に記載のナノカーボン製造装置において、前記移動手段は、前記グラファイトターゲットの表面の前記照射位置における前記光の照射角度を略一定にしながら前記光の照射位置を移動させるように構成されたことを特徴とするナノカーボン製造装置。

【請求項 3】 請求項 1 または 2 に記載のナノカーボン製造装置において、前記移動手段は、前記光が照射された箇所の前記グラファイトターゲットを消失させながら、前記光の照射位置を移動させるように構成されたことを特徴とするナノカーボン製造装置。

【請求項 4】 請求項 1 乃至 3 いずれかに記載のナノカーボン製造装置において、前記グラファイトターゲットの表面に照射される前記光のパワー密度が略一定となるように前記移動手段または前記光源の動作を制御する制御部をさらに有することを特徴とするナノカーボン製造装置。

【請求項 5】 請求項 1 乃至 4 いずれかに記載のナノカーボン製造装置において、前記移動手段は前記ターゲット保持手段に保持された前記グラファイトターゲットを並進移動させることを特徴とするナノカーボン製造装置。

【請求項 6】 請求項 1 乃至 5 いずれかに記載のナノカーボン製造装置において、一対のローラー間に無端ベルト状の前記グラファイトターゲットを架設し

、前記移動手段が前記ローラーを回転させることにより前記グラファイトターゲットを駆動するように構成されたことを特徴とするナノカーボン製造装置。

【請求項 7】 請求項 1 乃至 5 いずれかに記載のナノカーボン製造装置において、

前記グラファイトターゲットは回転体に巻回されたシート状のグラファイトターゲットであって、

前記移動手段は、前記回転体を回転駆動するとともに前記回転体から解放された前記グラファイトターゲットを前記光の照射位置の方向に押し出すように構成されたことを特徴とするナノカーボン製造装置。

【請求項 8】 請求項 1 乃至 7 いずれかに記載のナノカーボン製造装置において、前記ナノカーボンがカーボンナノホーン集合体であることを特徴とするナノカーボン製造装置。

【請求項 9】 シート状または棒状のグラファイトターゲットの表面に、光の照射位置を移動させながら光照射し、前記グラファイトターゲットから炭素蒸気を蒸発させる工程と、

前記炭素蒸気を回収し、ナノカーボンを得る工程と、  
を含むことを特徴とするナノカーボンの製造方法。

【請求項 10】 請求項 9 に記載のナノカーボンの製造方法において、前記グラファイトターゲットの表面への前記光の照射角度が略一定となるように前記光を照射する工程を含むことを特徴とするナノカーボンの製造方法。

【請求項 11】 請求項 9 または 10 に記載のナノカーボンの製造方法において、前記光が照射された箇所の前記グラファイトターゲットを消失させながら、前記グラファイトターゲットの表面における前記光の照射位置を移動させることを特徴とするナノカーボンの製造方法。

【請求項 12】 請求項 9 乃至 11 いずれかに記載のナノカーボンの製造方法において、前記ナノカーボンはカーボンナノホーン集合体であることを特徴とするナノカーボンの製造方法。

【発明の詳細な説明】

【0001】

**【発明の属する技術分野】**

本発明は、ナノカーボン製造装置およびナノカーボンの製造方法に関する。

**【0002】****【従来の技術】**

近年、ナノカーボンの工学的応用が盛んに検討されている。ナノカーボンとは、カーボンナノチューブやカーボンナノホーン等に代表される、ナノスケールの微細構造を有する炭素物質のことをいう。このうち、カーボンナノホーンは、グラファイトのシートが円筒状に丸まったカーボンナノチューブの一端が円錐形状となった管状体の構造を有しており、その特異な性質から、様々な技術分野への応用が期待されている。カーボンナノホーンは、通常、各々の円錐部間に働くファンデルワールス力によって、チューブを中心にし円錐部が角（ホーン）のように表面に突き出る形態で集合している。

**【0003】**

カーボンナノホーン集合体は、不活性ガス雰囲気中で原料の炭素物質（以下「グラファイトターゲット」とも呼ぶ。）に対してレーザー光を照射するレーザー蒸発法によって製造されることが報告されている（非特許文献1）。非特許文献1には、円柱状のグラファイトターゲットを軸に沿って回転させ、また、レーザー光をその側面に垂直に照射することが記載されている。

**【0004】**

ところが、円柱状のグラファイトターゲットの側面に沿ってレーザー光を照射する場合、レーザー光の照射位置のずれが生じることがあった。また、一度レーザー光を照射されたグラファイトターゲットの表面は粗面化されるため、粗面化された部位に再度レーザー光を照射すると、グラファイトターゲットの側面における光照射面積が変化しやすかった。

**【0005】**

このため、グラファイトターゲットの側面に照射される光のパワー密度にばらつきが生じ、カーボンナノホーン集合体の収率が低下することがあった。

**【0006】****【非特許文献1】**

S. Iijima、他6名、Chemical Physics Letters、ELSEVIER、1999年、第309号、p. 165-170

【0007】

【発明が解決しようとする課題】

本発明は上記事情に鑑みてなされたものであり、その目的は、カーボンナノホーン集合体を安定的に大量生産する技術を提供することにある。また、本発明の別の目的は、ナノカーボンを安定的に大量生産する技術を提供することにある。

【0008】

【課題を解決するための手段】

本発明によれば、シート状または棒状のグラファイトターゲットを保持するターゲット保持手段と、前記グラファイトターゲットの表面に光を照射する光源と、前記ターゲット保持手段に保持された前記グラファイトターゲットと前記光源のうち一方を他方に対して相対的に移動させ、前記グラファイトターゲットの表面における前記光の照射位置を移動させる移動手段と、前記光の照射により前記グラファイトターゲットから蒸発した炭素蒸気を回収し、ナノカーボンを得る回収手段と、を備えることを特徴とするナノカーボン製造装置が提供される。

【0009】

本発明に係るナノカーボン製造装置は、シート状または棒状のグラファイトターゲットを保持するターゲット保持手段を備える。また、グラファイトターゲットと光源のうち一方を他方に対して相対的に移動させる移動手段を有する。このため、これらの相対位置を移動させながらグラファイトターゲットの表面に光を照射することができる。

【0010】

また、従来用いられている円柱状のグラファイトターゲットを回転させながら、その表面に光を照射する場合、曲面に光を照射するため、照射位置のずれによる照射角度の変化の影響が大きく、パワー密度にぶれが生じやすい。これに対し、本発明ではシート状または棒状のグラファイトターゲットの表面に光を照射するため、照射位置がずれた際にもグラファイトターゲット表面における光の照射

角度が変化しにくい。このため、光が照射される表面におけるパワー密度の制御が容易となり、パワー密度のぶれを抑制することができる。よって、ナノカーボンの品質を安定化することができる。また、ナノカーボンの収率を向上させることができる。したがって、ナノカーボンを安定的に大量生産することが可能となる。

#### 【0011】

なお、本発明において、以下「パワー密度」とは、グラファイトターゲット表面に実際に照射される光のパワー密度、すなわちグラファイトターゲット表面の光照射部位におけるパワー密度を指すものとする。また、本発明において、グラファイトターゲットの表面を平面とすることができる。こうすれば、光の照射位置のずれによるパワー密度の変化をより一層確実に抑制することができる。

#### 【0012】

本発明によれば、シート状または棒状のグラファイトターゲットの表面に、光の照射位置を移動させながら光照射し、前記グラファイトターゲットから炭素蒸気を蒸発させる工程と、前記炭素蒸気を回収し、ナノカーボンを得る工程と、を含むことを特徴とするナノカーボンの製造方法が提供される。

#### 【0013】

本発明に係るナノカーボンの製造方法においては、シート状または棒状のグラファイトターゲット表面に光照射するため、光照射部位のずれによるパワー密度のぶれを抑制することができる。よって、ナノカーボンの品質を安定化することができる。また、ナノカーボンの収率を向上させることができる。したがって、ナノカーボンを安定的に大量生産することが可能となる。

#### 【0014】

本発明のナノカーボン製造装置において、前記移動手段は、前記グラファイトターゲットの表面の前記照射位置における前記光の照射角度を略一定にしながら前記光の照射位置を移動させるように構成されてもよい。

#### 【0015】

また、本発明のナノカーボンの製造方法において、前記グラファイトターゲットの表面への前記光の照射角度が略一定となるように前記光を照射する工程を含



んでもよい。

#### 【0016】

こうすることにより、光の照射位置にグラファイトターゲットを連続的に供給しながら、一定の照射角度でグラファイトターゲットの表面に光を照射することができる。よって、グラファイトターゲットの表面に照射される光のパワー密度のぶれをさらに確実に抑制することができる。このため、ナノカーボンを安定的に大量生産することができる。

#### 【0017】

本発明のナノカーボン製造装置において、前記移動手段は、前記光が照射された箇所の前記グラファイトターゲットを消失させながら、前記光の照射位置を移動させるように構成されてもよい。

#### 【0018】

また、本発明のナノカーボンの製造方法において、前記光が照射された箇所の前記グラファイトターゲットを消失させながら、前記グラファイトターゲットの表面における前記光の照射位置を移動させてもよい。

#### 【0019】

本発明においては、光照射位置にグラファイトターゲットを移動させながら光照射を行い、グラファイトターゲットが光照射された箇所から消失させる。このため、グラファイトターゲットの供給と消費とを連動させて効率よくグラファイトターゲットを使用することができる。また、グラファイトターゲット表面において、一度光が照射された箇所に再度の光照射されることなくグラファイトターゲットを消失させることができるため、一度の光照射によりグラファイトターゲットを使い切ることができる。一度光が照射された箇所では表面に凹凸が生じるため、再度光照射する際にパワー密度のぶれが生じやすいが、このようにすれば、グラファイトターゲット表面に照射される光のパワー密度のぶれをさらに確実に抑制することができる。このため、ナノカーボンの品質を安定化することができる。また、ナノカーボンの収率をさらに向上させることができる。

#### 【0020】

本発明のナノカーボン製造装置において、前記グラファイトターゲットの表面

に照射される前記光のパワー密度が略一定となるように前記移動手段または前記光源の動作を制御する制御部をさらに有してもよい。こうすることにより、グラファイトターゲットの表面に照射される光のパワー密度をより一層確実に制御することが可能となる。このため、安定した品質のナノカーボンを高収率で製造することができる。

#### 【0021】

本発明のナノカーボン製造装置において、前記移動手段は前記ターゲット保持手段に保持された前記グラファイトターゲットを並進移動させる構成とすることができる。グラファイトターゲットを並進移動させる構成とすることにより、グラファイトターゲットを回転させる回転機構を設ける必要がなく、装置構成を簡素化することができる。また、棒状またはシート状のグラファイトターゲットを並進移動させることにより、グラファイトターゲットの表面に照射する光のパワー密度のぶれの抑制が容易となる。このため、ナノカーボンの品質をさらに安定化することができる。また、ナノカーボンの収率を向上させることができる。

#### 【0022】

本発明のナノカーボン製造装置において、一对のローラー間に無端ベルト状の前記グラファイトターゲットを架設し、前記移動手段が前記ローラーを回転させることにより前記グラファイトターゲットを駆動するよう構成されてもよい。こうすることにより、光の照射位置にグラファイトターゲットを効率よく送出することができる。また、このときに照射される光のパワー密度の制御も容易となる。また、無端ベルト状のグラファイトターゲットを一对のローラー間に架設する構成とすることにより、装置を小型化することができる。なお、本発明において、「一对のローラー」に含まれるローラーの数は、二でもよいし、三以上であってもよい。

#### 【0023】

本発明のナノカーボン製造装置において、前記グラファイトターゲットは回転体に巻回されたシート状のグラファイトターゲットであって、前記移動手段は、前記回転体を回転駆動するとともに前記回転体から解放された前記グラファイトターゲットを前記光の照射位置の方向に押し出すように構成されてもよい。グラ

ファイトターゲットが回転体に巻回された構成とすることにより、装置をさらに小型化することができる。また、一度の製造に用いるグラファイトターゲットの量を増加させることができるため、より大量生産に適した構成とすることができる。

#### 【0024】

本発明のナノカーボン製造装置において、前記ナノカーボンがカーボンナノホーン集合体であってもよい。

#### 【0025】

また、本発明のナノカーボンの製造方法において、ナノカーボンを回収する前記工程は、カーボンナノホーン集合体を回収する工程を含むことができる。

#### 【0026】

こうすることにより、カーボンナノホーン集合体の大量生産を効率よく行うことができる。本発明において、カーボンナノホーン集合体を構成するカーボンナノホーンは、単層カーボンナノホーンとすることもできるし、多層カーボンナノホーンとすることもできる。

#### 【0027】

また、ナノカーボンとしてカーボンナノチューブを回収することもできる。

#### 【0028】

本発明のナノカーボンの製造方法において、光照射する前記工程は、レーザー光を照射する工程を含むことができる。こうすることにより、光の波長および方向を一定とすることができるため、グラファイトターゲット表面への光照射条件を、精度良く制御することができる。したがって、所望のナノカーボンを選択的に製造することが可能となる。

#### 【0029】

##### 【発明の実施の形態】

以下、ナノカーボンがカーボンナノホーン集合体である場合を例に、本発明に係るナノカーボン製造装置および製造方法の好ましい実施の形態について説明する。

#### 【0030】

### (第一の実施形態)

図1は、ナノカーボン製造装置の構成の一例を示す側面図である。なお、本明細書において、図1および他の製造装置の説明に用いる図は概略図であり、各構成部材の大きさは実際の寸法比に必ずしも対応していない。

#### 【0031】

図1のナノカーボン製造装置125は、製造チャンバ107およびナノカーボン回収チャンバ119の二つのチャンバを備える。製造チャンバ107には、不活性ガス供給部127が流量計129を介して接続されている。また、光源保持部112に保持されたレーザー光源111から出射するレーザー光103が、ZnSe平凸レンズ131およびZnSeウインドウ133を透過して、製造チャンバ107内に設置されたグラファイトターゲット139の表面に照射される。

#### 【0032】

グラファイトターゲット139は、レーザー光103の照射のターゲットとなる固体炭素単体物質である。グラファイトターゲット139はターゲット供給プレート135上のターゲット保持部153に保持されている。プレート保持部137は、ターゲット供給プレート135を水平方向に並進移動させる。このため、ターゲット供給プレート135が移動すると、その上に設置されたグラファイトターゲット139が移動し、レーザー光103の照射位置とグラファイトターゲット139の表面との相対的な位置が移動する構成となっている。

#### 【0033】

図2は、ターゲット供給プレート135およびプレート保持部137の構成をさらに詳細に説明する図である。図2(a)は上面図、図2(b)は、図2(a)のA-A'方向の断面図である。

#### 【0034】

ターゲット供給プレート135の底面およびプレート保持部137の表面にはネジ山が形成されており、ラックピニオン方式でターゲット供給プレート135が図2(b)中の左右方向に移動できるように構成されている。また、ターゲット供給プレート135の溝部155にターゲット保持部153の凸部157がスライド可能に掛合されているため、ターゲット保持部153およびターゲット保

持部 153 に保持されたグラファイトターゲット 139 が図 2 (a) 中の上下方向に移動できるように構成されている。

#### 【0035】

このような構成とすることにより、グラファイトターゲット 139 をレーザー光源 111 から出射するレーザー光 103 の照射位置に供給することができる。

#### 【0036】

また、グラファイトターゲット 139 の表面への照射光のパワー密度が略一定となるように、レーザー光 103 の照射角度または照射光強度などを調節する。たとえば、グラファイトターゲット 139 の表面が平面である場合、レーザー光 103 の照射角度が一定となるようにレーザー光源 111 を設置し、一定の強度でレーザー光 103 を照射することができる。

#### 【0037】

図 1 に戻り、搬送管 141 は、ナノカーボン回収チャンバ 119 に連通している。また、搬送管 141 は、グラファイトターゲット 139 の表面にレーザー光源 111 からレーザー光 103 が照射される際の、プルーム 109 の発生方向に設けられている。図 1 では、グラファイトターゲット 139 の表面と  $45^\circ$  の角をなすレーザー光 103 が照射されるため、プルーム 109 はグラファイトターゲット 139 の表面に対し垂直な方向に発生する。そして、搬送管 141 はグラファイトターゲット 139 の表面に垂直方向にその長さ方向を配置した構成となっている。こうすれば、生成したカーボンナノホーン集合体 117 が確実にナノカーボン回収チャンバ 119 に回収される。

#### 【0038】

グラファイトターゲット 139 として用いる固体炭素単体物質の形状に特に制限はないが、たとえばシート状または棒状とすることができる。グラファイトターゲット 139 の形状をシート状または棒状とし、グラファイトターゲット 139 の表面に照射するレーザー光 103 の照射角および強度を一定とすることにより、表面におけるパワー密度のぶれが抑制され、カーボンナノホーン集合体 117 を安定的に製造することが可能となる。また、レーザー光 103 の照射角を一定に保ちながら、棒状のグラファイトターゲット 139 をその長さ方向にスライ

ドさせた場合にも、グラファイトターゲット 139 の長さ方向にレーザー光 103 を一定のパワー密度で照射することができる。

#### 【0039】

このときの照射角は  $30^{\circ}$  以上  $60^{\circ}$  以下とすることが好ましい。なお、本実施形態において照射角とは、レーザー光 103 の照射位置におけるグラファイトターゲット 139 の表面に対する垂線とレーザー光 103 とのなす角のことである。図 10 は、この照射角を説明するための図である。図 10 (a) は、グラファイトターゲット 139 の表面が平面である場合のグラファイトターゲット 139 の断面図であり、図 10 (b) はグラファイトターゲット 139 の表面が曲面である場合のグラファイトターゲット 139 の断面図である。

#### 【0040】

この照射角を  $30^{\circ}$  以上とすることにより、照射するレーザー光 103 の反射、すなわち戻り光の発生を防止することができる。また、発生するプルーム 109 が ZnSe ウィンドウ 133 を通じて ZnSe 平凸レンズ 131 へ直撃することが抑制される。このため、ZnSe 平凸レンズ 131 を保護することができる。また、カーボンナノホーン集合体 117 の ZnSe ウィンドウ 133 への付着を抑制することができる。

#### 【0041】

また、照射角を  $60^{\circ}$  以下とすることにより、アモルファスカーボンの生成を抑制し、生成物中のカーボンナノホーン集合体 117 の割合、すなわちカーボンナノホーン集合体 117 の収率を向上させることができる。

#### 【0042】

また、照射角は、図 1 に示したように  $45^{\circ}$  とすることが特に好ましい。 $45^{\circ}$  で照射することにより、生成物中のカーボンナノホーン集合体 117 の割合をより一層高め、収率を向上させることができる。

#### 【0043】

以上のように、図 1 のナノカーボン製造装置においては、グラファイトターゲット 139 の表面におけるレーザー光 103 の照射位置を連続的に変化させることができるため、カーボンナノホーン集合体 117 を連続的に製造することが可

能である。また、グラファイトターゲット 139 表面に照射されるレーザー光 103 のパワー密度を一定に保つことが容易であるため、カーボンナノホーン集合体を高収率で安定的に製造することができる。

#### 【0044】

次に、図 1 の製造装置を用いたカーボンナノホーン集合体 117 の製造方法について具体的に説明する。

#### 【0045】

グラファイトターゲット 139 として、高純度グラファイト、たとえばシート状または棒状の、焼結炭素や圧縮成形炭素等を用いることができる。

#### 【0046】

また、レーザー光 103 として、たとえば、高出力  $\text{CO}_2$  ガスレーザー光などのレーザー光を用いる。

#### 【0047】

レーザー光 103 のグラファイトターゲット 139 への照射は、Ar、He 等の希ガスをはじめとする反応不活性ガス雰囲気、たとえば  $10^3 \text{ Pa}$  以上  $10^5 \text{ Pa}$  以下の雰囲気中で行う。また、圧力計 145 が接続された真空ポンプ 143 により、製造チャンバ 107 内を予めたとえば  $10^{-2} \text{ Pa}$  以下に減圧排気した後、不活性ガス雰囲気とすることが好ましい。

#### 【0048】

また、グラファイトターゲット 139 の表面におけるレーザー光 103 のパワー密度がほぼ一定、たとえば  $20 \pm 10 \text{ kW/cm}^2$  となるようにレーザー光 103 の出力、スポット径、および照射角を調節することが好ましい。

#### 【0049】

たとえば、レーザー光 103 の出力はたとえば  $3 \text{ kW}$  以上  $5 \text{ kW}$  以下とすることができる。また、パルス幅については、たとえば  $750 \text{ msec}$  以上  $1 \text{ sec}$  以下とすることが好ましい。こうすることにより、効率よくグラファイトターゲット 139 を蒸発させることができる。また、好ましい照射角度は、図 1 を用いて前述したように、 $30^\circ$  以上  $60^\circ$  以下とすることができ、 $45^\circ$  とすることが好ましい。グラファイトターゲット 139 の表面における照射されるレーザー

光103のスポット径は、たとえば0.5mm以上5mm以下とすることができる。

#### 【0050】

また、グラファイトターゲット139の表面にレーザー光103を照射しながら、グラファイトターゲット139を並進移動させる。このときの移動速度は、たとえば0.4mm/min以上4.8mm/min以下とする。4.8mm/min以下とすることにより、グラファイトターゲット139の表面に確実にレーザー光103を照射することができる。また、0.4mm/min以上とすることにより、効率よくカーボンナノホーン集合体117を製造することができる。

#### 【0051】

ナノカーボン製造装置125を用いて製造されたすす状物質は、カーボンナノホーン集合体117を主として含み、たとえば、カーボンナノホーン集合体117が90wt%以上含まれる物質として回収される。このように、ナノカーボン製造装置125を用いることにより、カーボンナノホーン集合体117を高い収率で得ることができる。また、得られるカーボンナノホーン集合体117の品質を安定化することができる。

#### 【0052】

また、ナノカーボン製造装置125では、グラファイトターゲット139の位置を平面方向に移動させることが可能であるため、レーザー光103照射によりグラファイトターゲット139を使い切ることが可能である。また、グラファイトターゲット139の屑を回収するためのチャンバ等を特に設ける必要がなく、構成を簡素化し、また小型化することができる。

#### 【0053】

なお、カーボンナノホーン集合体117を構成するカーボンナノホーンの形状、径の大きさ、長さ、先端部の形状、炭素分子やカーボンナノホーン間の間隔等は、レーザー光103の照射条件などによって様々に制御することが可能である。

#### 【0054】



## (第二の実施形態)

本実施形態は、ナノカーボン製造装置の別の構成に関する。本実施形態において、第一の実施形態に記載のナノカーボン製造装置 125 と同様の構成要素には同様の符号を付し、適宜説明を省略する。

### 【0055】

図3は、本実施形態に係るナノカーボン製造装置の構成を示す側面図である。図3のナノカーボン製造装置 149 は、グラファイトターゲット 139 の送り出しをベルトコンベア方式によって行う構成である。

### 【0056】

ナノカーボン製造装置 149 では、円柱形のローラー 161 の側面に、ターゲット保持プレート 159 を介して環状のグラファイトターゲット 139 が装着されている。ローラー 161 を所定の方向に回転させることにより、グラファイトターゲット 139 表面におけるレーザー光 103 の照射位置が移動する。

### 【0057】

レーザー光 103 の照射は、グラファイトターゲット 139 のうち、ターゲット保持プレート 159 に支持されている部分に行うことが好ましい。照射光のパワー密度を一定とするためには、照射部位の表面が平坦であることが好ましいのに対し、ターゲット保持プレート 159 に支持されていない角部では、ターゲット保持プレート 159 に支持されている部分よりグラファイトターゲット 139 の表面の曲率が大きいためである。

### 【0058】

本実施形態の構成では、ローラー 161 の側面にベルト状のグラファイトターゲット 139 を装着することにより、第一の実施形態に比べて一度に処理するグラファイトターゲット 139 の量を大きくすることができる。このため、より一層大量生産に適している。

### 【0059】

なお、本実施形態においても、第一の実施形態で図2を用いて説明した構成と同様に、ターゲット保持プレート 159 に溝部（図3では不図示）を形成し、これにターゲット保持部（図3では不図示）の凸部（図3では不図示）を掛合させ

ることにより、グラファイトターゲット 139 を図 3 中の紙面に垂直な方向にも移動させることが可能である。

#### 【0060】

##### (第三の実施形態)

本実施形態は、ナノカーボン製造装置の別の構成に関する。本実施形態においても、第一または第二の実施形態に記載のナノカーボン製造装置 125 またはナノカーボン製造装置 149 と同様の構成要素には同様の符号を付し、適宜説明を省略する。

#### 【0061】

図 4 は、本実施形態に係るナノカーボン製造装置の構成を示す側面図である。図 4 のナノカーボン製造装置 151 は、図 1 のナノカーボン製造装置 125 と基本的な構成は同じであるが、回転自在のターゲット支持柱 179 にグラファイトターゲット 139 が巻回されている点が異なる。シート状または棒状のグラファイトターゲット 139 は、ターゲット支持柱にロールとして巻回されており、これをレーザー光 103 の照射方向に順次送り出すことにより、連続的にカーボンナノホーン集合体 117 を得る構成となっている。

#### 【0062】

グラファイトターゲット 139 の一端がターゲット供給プレート 135 上に設置されている。ターゲット支持柱 179 がその中心軸を軸として回転し、またターゲット供給プレート 135 がプレート保持部 137 上を並進移動することにより、グラファイトターゲット 139 がレーザー光 103 の照射位置に供給される。

#### 【0063】

図 4 のナノカーボン製造装置においても、第一の実施形態で図 2 を用いて説明した構成と同様に、ターゲット供給プレート 135 に溝部（図 4 では不図示）を形成し、これにターゲット保持部（図 4 では不図示）の凸部（図 4 では不図示）を掛合させることにより、グラファイトターゲット 139 を図 4 中の紙面に垂直な方向にも移動させることが可能である。

#### 【0064】

また、図5はグラファイトターゲット139のロールを送り出す構成が異なる装置の構成を示す側面図である。図5のナノカーボン製造装置163は、グラファイトターゲット139をその両面から保持する二対のローラー165を有する。ターゲット支持柱179およびローラー165が回転することにより、グラファイトターゲット139がレーザー光103の照射方向に送り出される。

#### 【0065】

図4または図5に示したように、ロール状のグラファイトターゲット139を送り出す構成とすれば、より一層大量のグラファイトターゲット139を一度に処理することが可能となる。よって、カーボンナノホーン集合体117の大量生産にさらに有効である。

#### 【0066】

なお、グラファイトターゲット139は、Cu板等の基板上に形成されていることが好ましい。こうすることにより、ロール状のグラファイトターゲット139を送り出す際に、グラファイトターゲット139に生じるひび割れまたは破損を抑制することが可能である。この場合、グラファイトターゲット139を蒸発させた後の基板を巻きとるための巻き取り部を製造チャンバ107内に設けてもよい。

#### 【0067】

##### (第四の実施形態)

以上説明した第一～第三の実施形態において、レーザー光103が二回照射された際に照射部分のグラファイトターゲット139を使い切るように、グラファイトターゲット139の厚さを調節してもよい。以下、図1のナノカーボン製造装置125にシート状のグラファイトターゲット139を適用してカーボンナノホーン集合体117を作製する方法を例に説明する。

#### 【0068】

たとえば、グラファイトターゲット139の表面に照射されるレーザー光103のパワー密度が約 $20\text{ kW/cm}^2$ である場合、一回レーザー光103が照射されることにより蒸発するグラファイトターゲット139の厚さは、表面から3mm程度である。そこで、この場合、グラファイトターゲット139の厚さを6

mm程度とする。

#### 【0069】

そして、図2 (a) において、レーザー光103の照射位置をグラファイトターゲット139上のpからqに向かって移動させ、qまで照射されたらグラファイトターゲット139を逆方向にpまで移動させる。このように一往復させると、p-q間のグラファイトターゲット139がすべて蒸発し、消失する。次いで、レーザー光103の照射位置を図中の下方向にpからp'まで移動させ、同様にp'-q'間を一往復させる。この往復照射を $p^n-q^n$ 間まで繰り返すことにより、グラファイトターゲット139を使い切ることができる。

#### 【0070】

グラファイトターゲット139の表面へのレーザー光103の照射回数が増すほど、照射された表面が粗面化し、パワー密度のぶれが大きくなる場合があるが、グラファイトターゲット139の厚さをこのようにすればパワー密度のぶれを抑制することができる。このため、カーボンナノホーン集合体117の収率を向上させることができる。

#### 【0071】

なお、グラファイトターゲット139の厚さの調整は、レーザー光103が二回照射された際に消失するような場合に限られず、たとえば三回のレーザー光103照射により消失するようにしてもよい。この場合、図2 (a) において、1.5往復ごとに図2 (a) 中の上下方向にグラファイトターゲット139を移動させればよい。

#### 【0072】

##### (第五の実施形態)

第四の実施形態において、レーザー光103が一回照射された際に照射部分のグラファイトターゲット139を使い切るように、グラファイトターゲット139の厚さを調節してもよい。

#### 【0073】

こうすることにより、一度レーザー光103が照射された位置に再度レーザー光103を照射する必要がなくなるため、レーザー光103の照射面が常に平滑

に保たれる。このため、グラファイトターゲット 139 の表面に照射されるレーザー光 103 のパワー密度のぶれをさらに抑制することができる。よって、カーボンナノホーン集合体 117 の製造安定性をさらに向上させることが可能となる。

#### 【0074】

グラファイトターゲット 139 をシート状とする場合、たとえば、図 6 のような表面を有する形状とすることができる。図 6 (a) は平板であり、レーザー光 103 のパワー密度を一定にすることが容易であるため好ましい。また、図 6 (b) では、グラファイトターゲット 139 の表面に規則的な繰り返し構造が形成されている。このような形状とする場合、繰り返し構造の幅  $w$  をレーザー光 103 のスポット径に略等しくすることが好ましい。こうすることにより、グラファイトターゲット 139 に照射されるレーザー光 103 のパワー密度を一定とすることができる。なお、グラファイトターゲットの表面形状は図 6 に示した構成に特に限定されず、適宜選択することができる。

#### 【0075】

また、グラファイトターゲット 139 の厚さ  $h$  は、前述のように一度のレーザー光 103 の照射ですべて蒸発する程度の厚さとする。たとえば、グラファイトターゲット 139 の表面に照射されるレーザー光 103 のパワー密度が約  $20 \text{ kW/cm}^2$  である場合、一回レーザー光 103 が照射されることにより蒸発するグラファイトターゲット 139 の厚さは、表面から  $3 \text{ mm}$  程度であるため、厚さ  $h$  を  $3 \text{ mm}$  程度とすることができる。

#### 【0076】

なお、本実施形態および第四の実施形態において、グラファイトターゲット 139 の幅がレーザー光 103 のスポット径と略等しい棒状としてもよい。こうすれば、グラファイトターゲット 139 の移動方向を図 2 (a) の A-A' 方向のみとすることができる。このため、ターゲット供給プレート 135 とターゲット保持部 153 との間に溝部 155 と凸部 157 との組み合わせによる可動機構を形成する必要がなく、装置構成をより簡素化することが可能となる。

#### 【0077】

図7は、棒状のグラファイトターゲット139の形状の一例を示す図である。図7(a)は四角柱、図7(b)は円柱のグラファイトターゲット139である。グラファイトターゲット139の形状は、これらに限定されないが、一定の断面形状を有していることが好ましい。断面形状を一定とすることにより、グラファイトターゲット139の表面に照射されるレーザー光103のパワー密度のぶれを抑制することができる。また、グラファイトターゲット139の最大幅wおよび厚さhは、レーザー光103のスポット径以下とすることが好ましい。こうすることにより、一度のレーザー光103の照射で確実にグラファイトターゲット139を使い切ることができる。

#### 【0078】

また、本実施形態は、第四の実施形態同様、図3および図4に示したナノカーボン製造装置にも適用可能である。

#### 【0079】

##### (第六の実施形態)

以上に述べた実施形態におけるプロセス管理は、たとえば以下のようにすることができる。図8は、上述のナノカーボン製造装置におけるプロセス管理の方法を説明するための図である。

#### 【0080】

図8において、プロセス管理部167は、計時部169から入力される時間情報に基づいて、各プロセスのスケジュール管理を行う。このスケジュール管理について、第四の実施形態において第一の実施形態のナノカーボン製造装置125(図1、図2)を用いる場合を例に、図9のフローチャートに沿って説明する。

#### 【0081】

まず、ポンプ制御部171は、真空ポンプ143を駆動させ、ナノカーボン回収チャンバ119およびこれに連通する製造チャンバ107を減圧排気する(S101)。一定時間減圧排気が行われたら、真空ポンプ143を停止し、不活性ガス制御部173は、不活性ガス供給部127から不活性ガスを製造チャンバ107内に一定量供給する(S102)。そして、レーザー光制御部175は、レーザー光源111から所定の強度のレーザー光103(図8では不図示)を照

射する (S103)。

#### 【0082】

また、移動手段制御部 177 は、プレート保持部 137 を回転させ、ターゲット供給プレート 135 を所定の速度で移動させる (S104)。ステップ 104 は、図 2 (a) における、グラフィットターゲット 139 の p-q 方向の移動に対応し、たとえばグラフィットターゲット 139 の表面におけるレーザー光 103 の照射位置が p-q 間で一往復するように、グラフィットターゲット 139 を移動させる。

#### 【0083】

そして、所定の時間が経過したら (S105 の Yes)、さらに、グラフィットターゲットが使い切られていなければ、(S106 の No)、移動手段制御部 177 はターゲット供給プレート 135 に掛合されたターゲット保持部 153 の位置を移動させ (S107)、ステップ 104 からの各ステップを繰り返す。ステップ 107 は、図 2 (a) における、グラフィットターゲット 139 の p-p<sup>n</sup> 方向の移動に対応し、たとえばレーザー光 103 の照射位置を p から p' まで移動させる。

#### 【0084】

以上の操作を、グラフィットターゲット 139 を使い切るまで繰り返すことにより (S106 の Yes)、グラフィットターゲット 139 がすべて使用され、カーボンナノホーン集合体 117 の製造が終了する。

#### 【0085】

以上の各ステップが、プロセス管理部 167 によって管理される。

#### 【0086】

なお、図 8 に示したプロセス管理において、移動手段制御部 177 がレーザー光源 111 の照射角度を調節する構成としてもよい。さらに、レーザー光制御部 175 がレーザー光 103 の出射光強度を変化させながらレーザー光 103 を照射する構成としてもよい。こうすることにより、グラフィットターゲット 139 に照射されるレーザー光 103 のパワー密度をより一層精密に調節することが可能となる。

## 【0087】

以上、ナノカーボンとしてカーボンナノホーン集合体を製造する場合を例に説明したが、本実施形態に係るナノカーボン製造装置を用いて製造されるナノカーボンは、カーボンナノホーン集合体には限定されない。

## 【0088】

たとえば、本実施形態に係るナノカーボン製造装置を用いて、カーボンナノチューブを製造することもできる。カーボンナノチューブを製造する場合、グラファイトターゲット139の表面におけるレーザー光103のパワー密度がほぼ一定、たとえば $50 \pm 10 \text{ kW/cm}^2$ となるようにレーザー光103の出力、スポット径、および照射角を調節することが好ましい。

## 【0089】

また、グラファイトターゲット139には、触媒金属をたとえば0.0001 wt %以上5 %以下添加する。金属触媒として、たとえばNi、Coなどの金属を用いることができる。

## 【0090】

本実施形態に係るナノカーボン製造装置を用いることにより、レーザー光103の照射位置にグラファイトターゲット139を連続的に送り出すことができるため、カーボンナノチューブの製造においてもこれを安定的に大量生産することが可能である。

## 【0091】

また、図1、図3、または図4の装置では、レーザー光103の照射によって得られたすす状物質がナノカーボン回収チャンバ119に回収される構成となっているが、適当な基板上に堆積して回収することや、ダストバッグによる微粒子回収の方法によって回収することもできる。また、不活性ガスを反応容器内で流通させて、不活性ガスの流れによりすす状物質を回収することもできる。

## 【0092】

また、図1、図3、または図4の装置では、レーザー光103の照射位置を一定とし、グラファイトターゲット139を移動させることによりこれらの相対位置を移動させたが、レーザー光源111を移動手段に保持させることにより、レ



ーザー光103を移動させて相対位置を変化させてもよい。

【0.093】

【発明の効果】

以上説明したように本発明によれば、ナノカーボンを安定的に大量生産することができる。また本発明によれば、カーボンナノホーン集合体を安定的に大量生産することができる。

【図面の簡単な説明】

【図1】

実施の形態に係るナノカーボンの製造装置の構成を示す側面図である。

【図2】

実施の形態に係るナノカーボンの製造装置の構成を示す図である。

【図3】

実施の形態に係るナノカーボンの製造装置の構成を示す側面図である。

【図4】

実施の形態に係るナノカーボンの製造装置の構成を示す側面図である。

【図5】

実施の形態に係るナノカーボンの製造装置の構成を示す側面図である。

【図6】

実施の形態に係るナノカーボンの製造装置に適用可能なグラファイトターゲットの形状を例示する図である。

【図7】

実施の形態に係るナノカーボンの製造装置に適用可能なグラファイトターゲットの形状を例示する図である。

【図8】

実施の形態に係るナノカーボンの製造装置におけるプロセス管理の方法を説明するための図である。

【図9】

実施の形態に係るナノカーボンの製造方法を説明するための図である。

【図10】

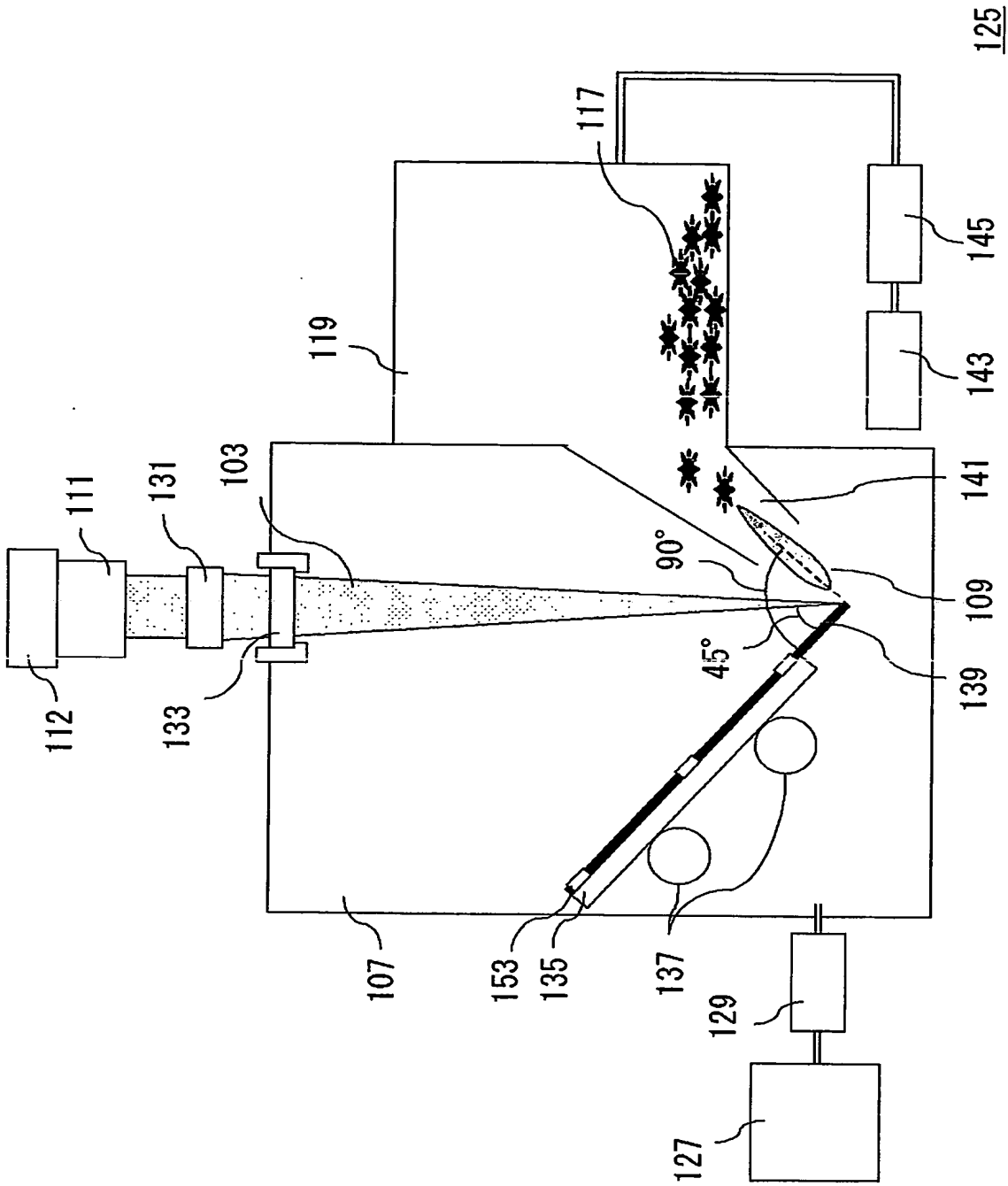
レーザー光の照射角を説明するための図である。

【符号の説明】

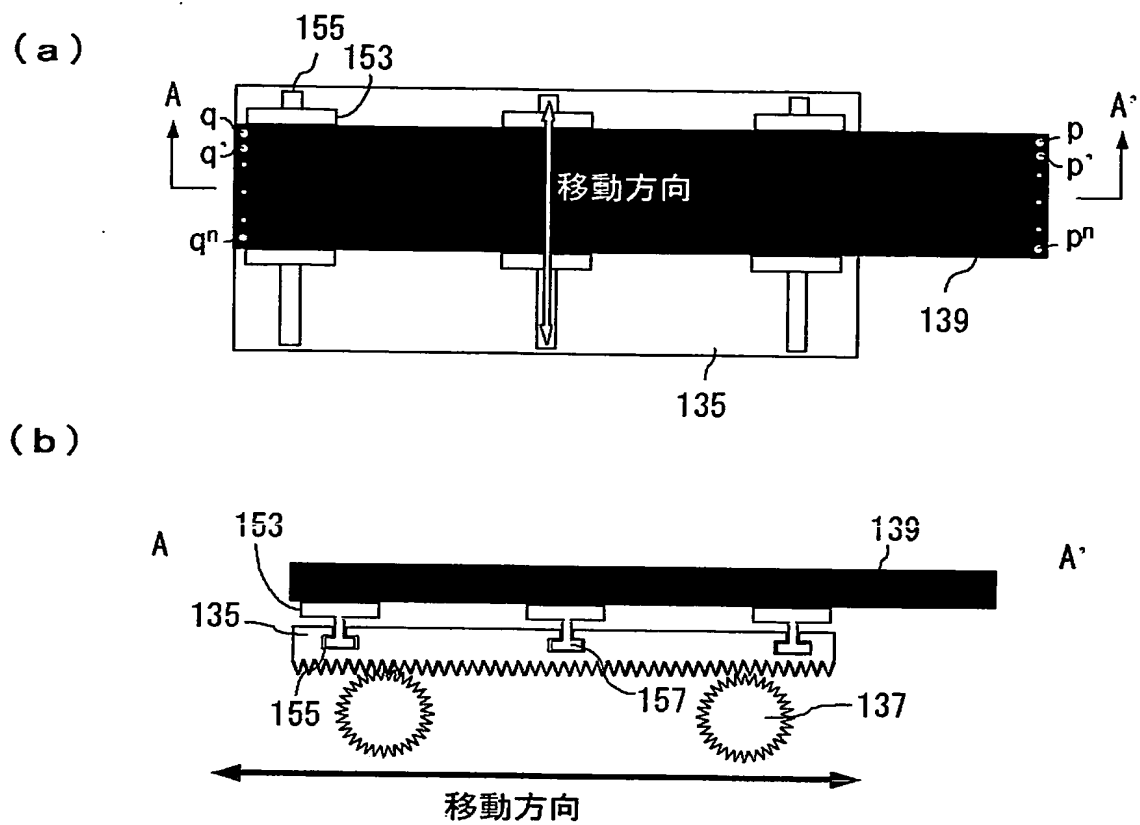
- 103 レーザー光
- 107 製造チャンバ
- 109 プルーフ
- 111 レーザー光源
- 112 光源保持部
- 117 カーボンナノホーン集合体
- 119 ナノカーボン回収チャンバ
- 125 ナノカーボン製造装置
- 127 不活性ガス供給部
- 129 流量計
- 131 ZnSe 平凸レンズ
- 133 ZnSe ウインドウ
- 135 ターゲット供給プレート
- 137 プレート保持部
- 139 グラファイトターゲット
- 141 搬送管
- 143 真空ポンプ
- 145 圧力計
- 149 ナノカーボン製造装置
- 151 ナノカーボン製造装置
- 153 ターゲット保持部
- 155 溝部
- 157 凸部
- 159 ターゲット保持プレート
- 161 ローラー
- 163 ナノカーボン製造装置
- 165 ローラー

- 1 6 7 プロセス管理部
- 1 6 9 計時部
- 1 7 1 ポンプ制御部
- 1 7 3 不活性ガス制御部
- 1 7 5 レーザー光制御部
- 1 7 7 移動手段制御部
- 1 7 9 ターゲット支持柱

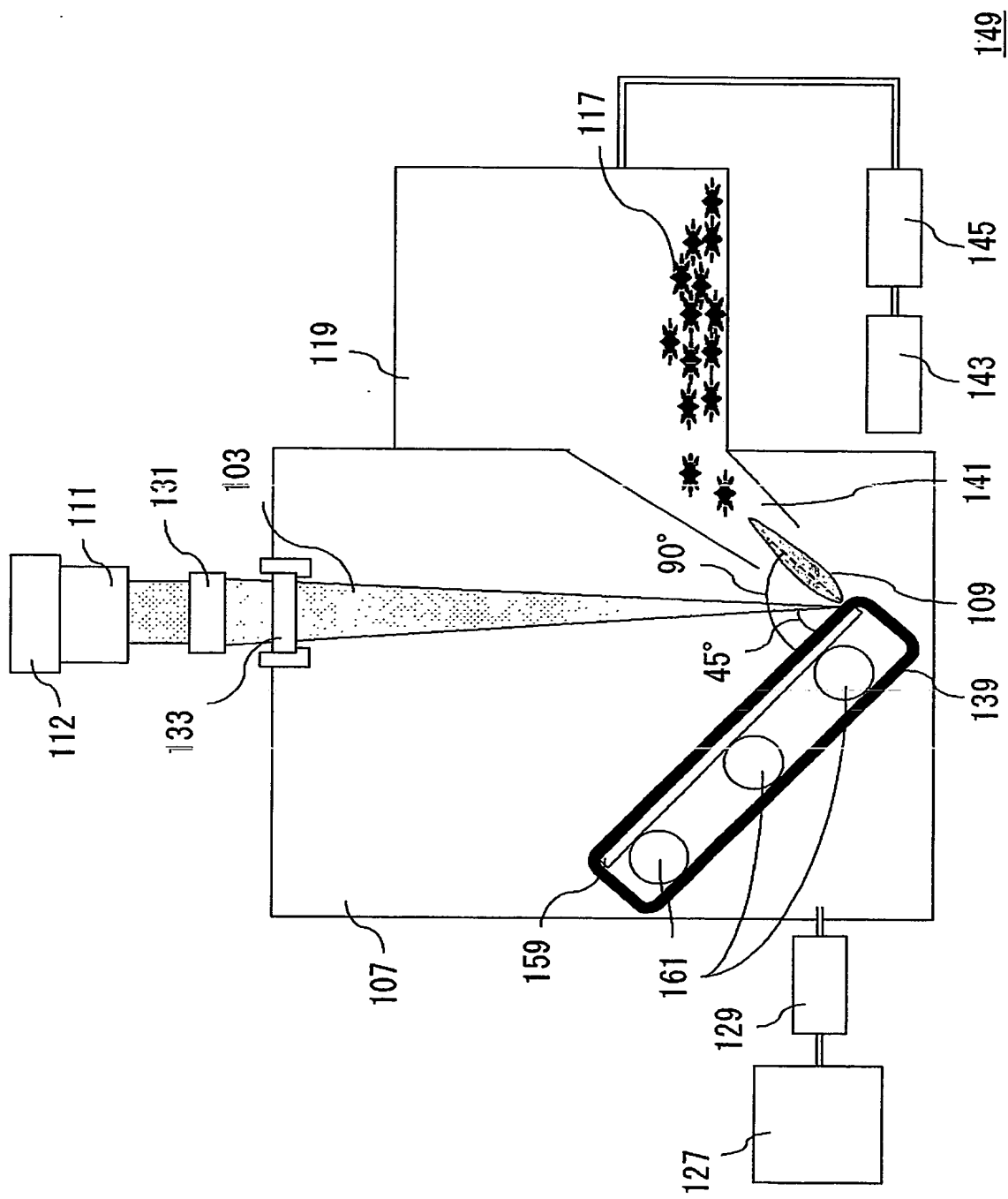
【書類名】 図面  
【図 1】



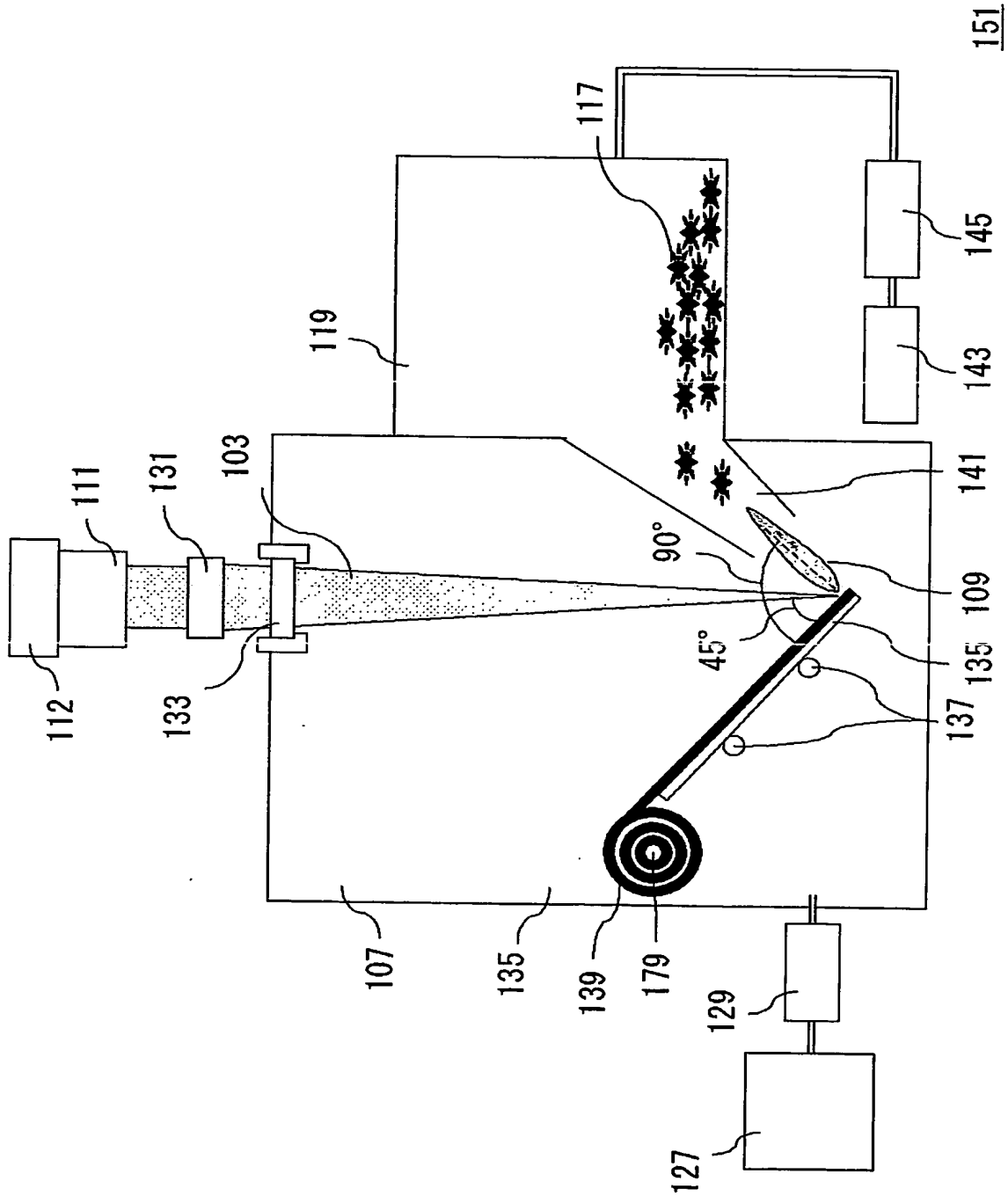
【図 2】



【図 3】



【図 4】

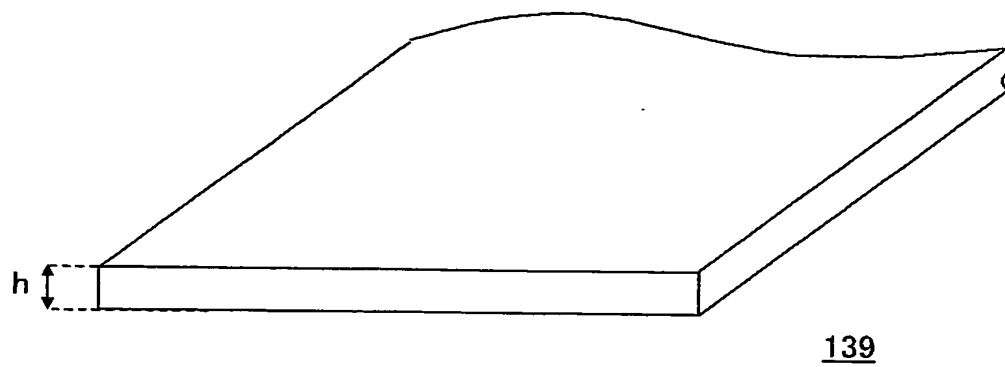




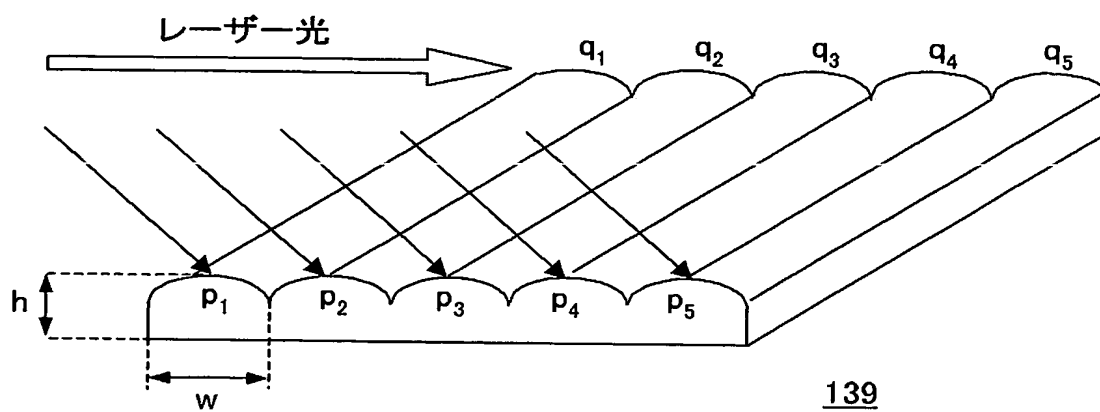


【図 6】

(a)

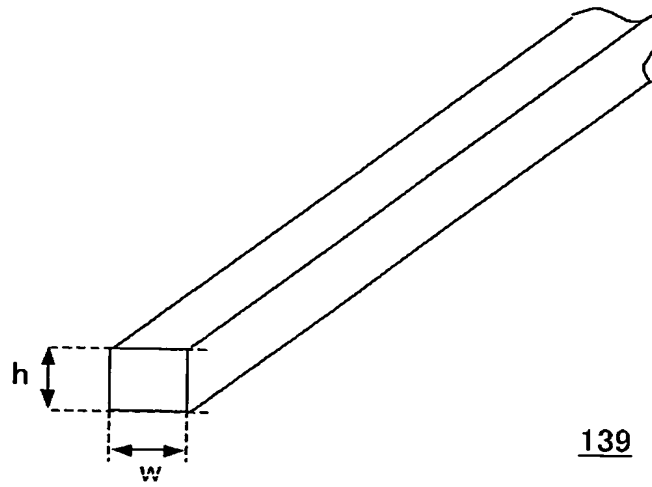


(b)

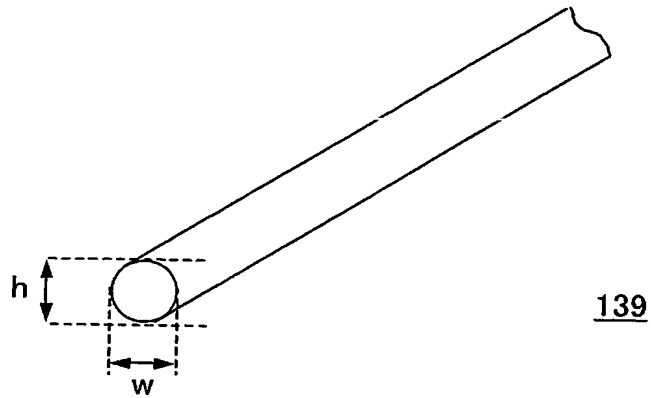


【図 7】

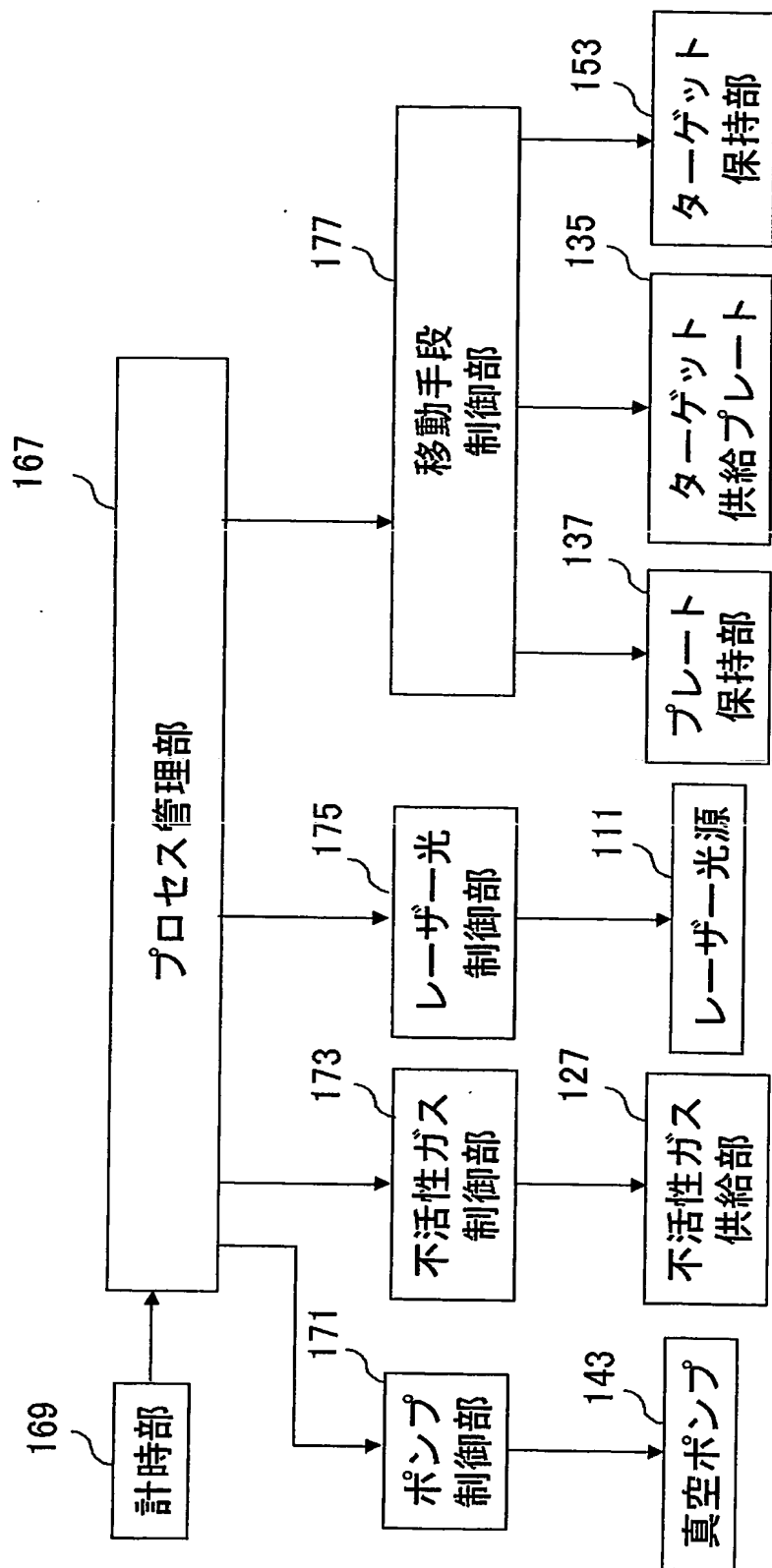
(a)



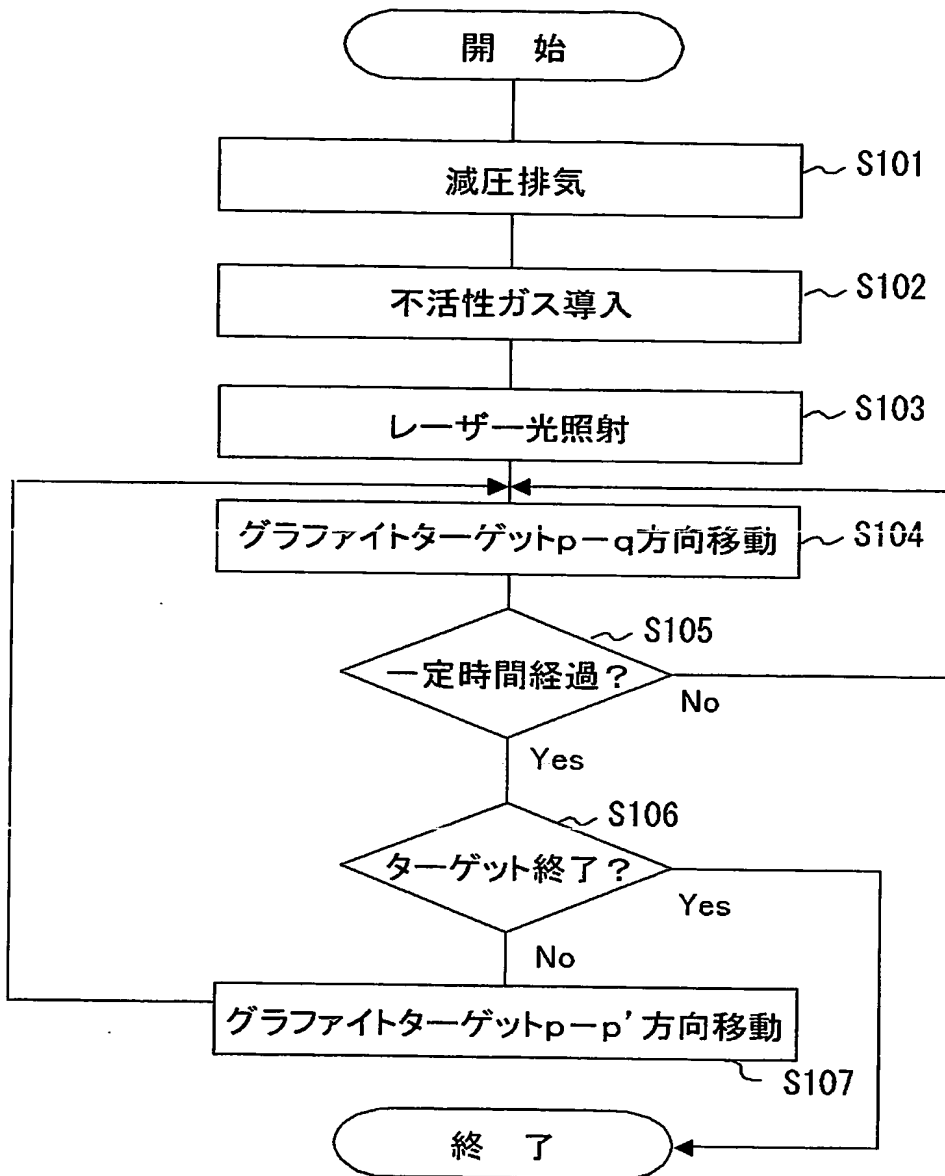
(b)



【図 8】

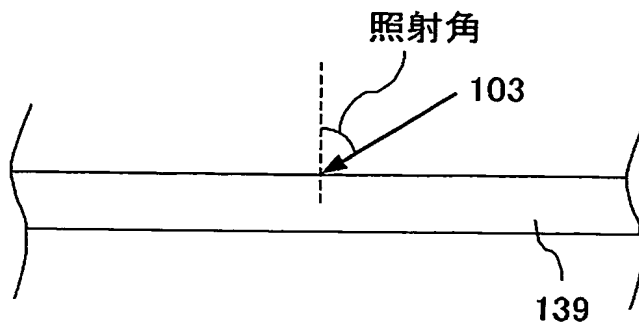


【図 9】

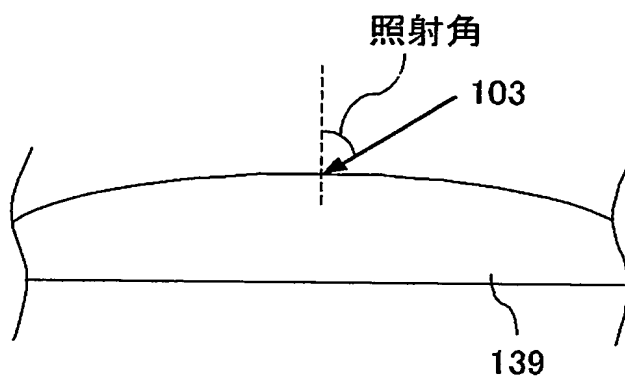


【図 10】

(a)



(b)



【書類名】 要約書

【要約】

【課題】 カーボンナノホーン集合体を安定的に大量生産するための技術を提供する。また、ナノカーボンを安定的に大量生産するための技術を提供する。

【解決手段】 レーザー光 1 0 3 が照射されるグラファイトターゲット 1 3 9 の表面を平面とする。グラファイトターゲット 1 3 9 をターゲット供給プレート 1 3 5 上のターゲット保持部 1 5 3 に保持する。プレート保持部 1 3 7 は、ターゲット供給プレート 1 3 5 を並進移動させ、レーザー光 1 0 3 の照射位置とグラファイトターゲット 1 3 9 の表面との相対的な位置を移動させる。プルーム 1 0 9 の発生方向に、ナノカーボン回収チャンバ 1 1 9 と連通する搬送管 1 4 1 を設け、生成したカーボンナノホーン集合体 1 1 7 をナノカーボン回収チャンバ 1 1 9 中に回収する。

【選択図】 図 1

特願 2 0 0 3 - 1 2 5 8 4 4

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号

[ 0 0 0 0 0 4 2 3 7 ]

1. 変更年月日

1 9 9 0 年 8 月 2 9 日

[変更理由]

新規登録

住 所

東京都港区芝五丁目 7 番 1 号

氏 名

日本電気株式会社